

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2003-124527

(P2003-124527A)

(43)公開日 平成15年4月25日(2003.4.25)

(51)IntCl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード(参考)
H 0 1 L 33/00		H 0 1 L 33/00	N 4 H 0 0 1
C 0 9 K 11/08		C 0 9 K 11/08	J 5 F 0 4 1
11/59	C Q F	11/59	C Q F
11/62	C P S	11/62	C P S
11/64	C Q D	11/64	C Q D

審査請求 未請求 請求項の数15 O L (全 10 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2002-206125(P2002-206125)

(22)出願日 平成14年7月15日(2002.7.15)

(31)優先権主張番号 1 0 1 3 3 3 5 2 . 8

(32)優先日 平成13年7月16日(2001.7.16)

(33)優先権主張国 ドイツ (DE)

(71)出願人 390009472

パテントトロイハントーゲゼルシャフト
フュール エレクトリツシエ グリユー
ラムベン ミット ベシユレンクテル ハ
フツング

ドイツ連邦共和国 ミュンヘン ヘラブル
ンネル ストラーセ 1

(72)発明者 アンドリース エレンス

オランダ国 デン ハーグ マリオッテス
トラート 77

(74)代理人 100061815

弁理士 矢野 敏雄 (外4名)

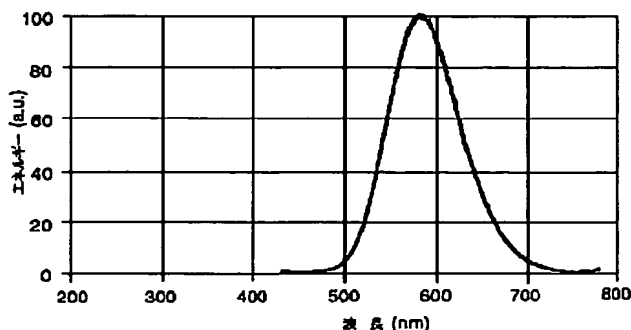
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 光源として少なくとも1つのLEDを備えた照明ユニット

(57)【要約】

【課題】 運転温度が変化する場合でも高い不変性を示し、高い色再現性及び高い効率を有する照明ユニットを提供すること

【解決手段】 光源として少なくとも1つのLEDを備え、このLEDが300～485nmの領域内の一次放射を発生し、このLEDの一次放射にさらされる蛍光体によって、この放射は部分的に又は完全に長波長の放射に変換される照明ユニットにおいて、この変換が少なくとも、540～620nmのピーク発光の波長を有する黄－オレンジを発生しかつEu⁺活性化されたサイアロンの種類から由来する蛍光体を用いて行われ、前記のサイアロンは式M_p/2Si_{12-p-q}Al_{p+q}O_qN_{16-q}:Eu²⁺で表され、前記式中、MはCa単独又はSr又はMgと組み合わせたCaを表し、qは0～2.5であり、pは0～3である、照明ユニット



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 光源として少なくとも 1 つの LED を備え、この LED が 300～485 nm の領域内の一次放射を発生し、この LED の一次放射にさらされる蛍光体によって、この放射は部分的に又は完全に長波長の放射に変換される照明ユニットにおいて、この変換が少なくとも、540～620 nm のピーク発光の波長を有する黄－オレンジに発光しかつ Eu²⁺ 活性化されたサイアロンの種類に由来する蛍光体を用いて行われ、前記のサイアロンは式 $M_p / 2 Si_{12-p-q} Al_{p+q} O_q N_{16-q} : Eu^{2+}$ で表され、前記式中、M は Ca 単独又は金属 Sr 又は Mg の少なくとも 1 つと組み合わせた Ca を表し、q は 0～2.5 であり、p は 0.5～3 であることを特徴とする、光源として少なくとも 1 つの LED を備えた照明ユニット。

【請求項 2】 Al が部分的に（20 モル%まで）Ga に置き換えられている、請求項 1 記載の照明ユニット。

【請求項 3】 $q < 1$ 及び／又は $p = 2 \sim 3$ が選択される、請求項 1 記載の照明ユニット。

【請求項 4】 蛍光体粉末の平均粒度が 0.5～5 μm の間から選択される、請求項 1 記載の照明ユニット。

【請求項 5】 白色光を発生させるために、一次発光する放射が 330～370 nm の波長領域にあり、この一次発光する放射は、変換のために青（430～470 nm）及び黄－オレンジ（特に 545～590 nm）に最大発光を示す少なくとも 2 種の蛍光体にさらされる、請求項 1 記載の照明ユニット。

【請求項 6】 一次放射は、変換のために緑（490～525 nm）又は赤（625～700 nm）に発光する少なくとももう 1 種の別の蛍光体にさらされる、請求項 5 記載の照明ユニット。

【請求項 7】 前記の別の蛍光体が、クロロシリケート又は Y ベースの又は Tb ベースのガーネットである、請求項 6 記載の照明ユニット。

【請求項 8】 白色光を発生させるために、一次発光する放射は 430～470 nm の青色波長領域にあり、この一次発光する青色放射は、前記の請求項のいずれか 1 つに記載された黄－オレンジ（545～590 nm）及び緑（490～525 nm）に最大発光を示す 2 種の蛍光体にさらされる、請求項 1 記載の照明ユニット。

【請求項 9】 有色光を発生させるために、一次発光する放射は 430～485 nm の青色波長領域にあり、この一次発光する青色放射は、前記の請求項のいずれか 1 つに記載された黄－オレンジ（545～590 nm）に最大発光を示す 1 種の蛍光体にさらされる、請求項 1 記載の照明ユニット。

【請求項 10】 黄－オレンジ－蛍光体の混合割合が約 0.5～15% である、請求項 9 記載の照明ユニット。

【請求項 11】 一次放射源として、短波長で発光する発光ダイオード、特に Ga(In)N をベースとする発

光ダイオードを使用する、請求項 1 記載の照明ユニット。

【請求項 12】 Sr 及び／又は Mg の割合が高くてもカチオン M の 40 モル% である、請求項 1 記載の照明ユニット。

【請求項 13】 照明ユニットが発光変換－LED であり、この場合、蛍光体はチップと直接又は間接的に接触している、請求項 1 記載の照明ユニット。

【請求項 14】 照明ユニットが LED のフィールド（アレイ）である、請求項 1 記載の照明ユニット。

【請求項 15】 蛍光体の少なくとも 1 種が LED－フィールドの前に取り付けられた光学装置上に設けられている、請求項 1 記載の照明ユニット。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は光源として請求項 1 の上位概念に記載された少なくとも 1 つの LED を備えた照明ユニットに関する。特に、UV／青色に一次発光する LED をベースとする可視光又は白色光を発光する LED である。

【0002】

【従来の技術】 例えば白色光を放射する光源として少なくとも 1 つの LED を備えた照明ユニットは、現在では主に約 460 nm で青色に発光する Ga(In)N－LED と、黄色に発光する YAG:Ce³⁺ 蛍光体との組み合わせによって実現されている（US 5 998 925 及び EP 862 794）。この場合、良好な色再現のために W0-A 01/08453 に記載されたような 2 種の異なる黄色－蛍光体を使用される。この場合、双方の蛍光体は、その構造が類似している場合であっても、しばしば異なる温度特性を示すことが問題である。公知の例は、黄色に発光する Ce－ドープされた Y－ガーネット（YAG:Ce）及びそれと比べてより長波長で発光する（Y,Gd）－ガーネットである。これは、運転温度が異なる場合に色座標の変動及び色再現性の変化を引き起こす。

【0003】 刊行物（“On new rare-earth doped M-Si-Al-Q-N materials” van Kreveld 著, TU Eindhoven 2000, ISBN 90-386-2711-4, 第 11 章）からは、その構造の省略形でサイアロン（α－サイアロン）として表される蛍光体材料の種類は公知である。Eu でドープすることにより、365 nm 又は 254 nm での励起の際に 560～590 nm の領域での放射が達成される。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の課題は、運転温度が変化する場合でも高い不変性を特徴とする、光源として請求項 1 の上位概念に記載の照明ユニットを提供することである。もう一つの課題は、白色に発光しかつ特に高い色再現性及び高い効率を有する照明ユニットを提供することである。

【0005】

【課題を解決するための手段】前記課題は、請求項1の特徴部により解決される。特に有利な実施態様は、引用形式請求項に記載されている。

【0006】本発明により、LEDベースの照明ユニット用の蛍光体として、黄色ーオレンジ色に発光しかつEu-活性化されたサイアロンの種類からなるサイアロン(Sialon)が使用され、その際、サイアロンは式 $M_{p/2}Si_{12-p-q}Al_pO_qN_{16-q}:Eu^{2+}$ [式中、M=Ca単独又はSr及びMgと組み合わせた形であり、q=0~2.5及びp=0.5~3]で示される。有利に、pについて比較的高い値、つまりp=2~3が選択され、qについて比較的低い値、つまりq=0~1が選択される。純粋なAlの代わりに、特に20モル%までのGaの割合を有するAl、Gaの混合物を使用することができる。

【0007】カチオンMの一部を置き換えるEu-割合は、M-カチオンの0.5~15%、有利に1~10%であるのが好ましく、それにより、発光波長の特に正確な選択を行うことができ、発光効率を最適化することができる。Eu含有量が増加すると、一般にピーク発光がより長波長にずれることになる。意外にも、カチオンMの濃度を変更することでもピーク発光の波長がずれることが明らかになった。M-カチオンが比較的低い濃度の場合、M-カチオンの10%を上回るEu-イオンの割合を選択することにより、Eu-イオンによる良好な吸収を得ることができる。

【0008】LEDベースの照明ユニットとの関係においてこの蛍光体の特別な利点は、特に少なくとも1つの別の蛍光体と組み合わせた場合に、高い効率、優れた温度安定性(運転温度の変化に対する不感受性)及びルミネッセンスの意外に高い消去温度並びにそれにより達成可能な高い色再現性である。消去温度、つまり供給された熱によりルミネッセンスが破壊される温度は、予め選択された測定領域(最大140℃)外にあるほど高くにある。

【0009】この種の蛍光体のもう一つの利点は、出発材料(特にSi₃N₄)がすでに微細に分散した形で存在することである。従って、蛍光体の粉碎は必要ない。それに対して、慣用の蛍光体、例えばYAG:Ceは、注入樹脂中で分散を維持しかつ底部に沈殿しないようにするために粉碎しなければならない。この粉碎工程は頻繁に効率を損なってしまう。本発明による蛍光体は、出発材料が微細な粒度であるにもかかわらず、意外に高い吸収を示す。従って、この蛍光体はもはや粉碎する必要はなく、それにより作業工程を節約しかつ有効性を失うことはない。蛍光体の一般的な平均粒度は、0.5~5μmである。

【0010】LEDのUV線又は青色の一次放射での励起により有色の光源を発生させる他に、特にこの蛍光体を用いて白色光が生じることは有利である。このこと

は、少なくとも2種、有利に3種の蛍光体を使用して、一次光源としてUV放射するLEDの場合にも生じる。また、青色発光するLED並びに1種又は2種の蛍光体を使用することもできる。熱安定性の粒状蛍光物質、有利にYAG:Ceと、Euドーブされたサイアロンとの混合物により優れた結果が示される。

【0011】良好な色再現性を有する白色光は、青色LED(例えば450~485nmでの一次発光)、緑色蛍光体(490~525nmの発光)及び黄色ーオレンジ色(GO)発光する蛍光体(発光:540~620nm)との組み合わせによっても達成される。

【0012】GO-蛍光体として $M_{p/2}Si_{12-p-q}Al_pO_qN_{16-q}:Eu^{2+}$ が使用される。この場合、MはCa単独であるか又はSr及び/又はMgと組み合わせた形である。このGO-蛍光体は優れた熱安定性を有し、かつLEDにとって典型的であるように高温で優れた発光特性を示す:この蛍光体は80℃まで測定精度の範囲内で発光の減少を示さない。これに比べて、従来の黄色蛍光体は80℃で発光の明らかに測定可能な減少を示す:これは、YAGの場合5%であり、(Y,Gd)AGの場合10~20%である。

【0013】Ra=75を越える良好な色再現性は、特に、青色LEDを一次光源として使用し、Euドーブしたサイアロンとクロロシリケート(Euドーブ又はEu,Mnドーブした)又はSrAl₂O₄:Eu²⁺との混合物を使用する場合に達成される。YAG及び(Y,Gd)AGからなる混合物と比較して、色再現性はほぼ同じ程度高く、効率はいくらか高く、熱による消去挙動は明らかに改善される。赤における色再現性は必要に応じて、赤色蛍光体、例えばSr₂Si₅N₈:Eu²⁺又はSrS:Eu²⁺を添加することにより改善することができる。

【0014】白色混合は、UV発光LEDをベースとし、このEuドーブしたサイアロンを青色蛍光体、例えばBaMgAl₁₀O₁₇:Eu²⁺(BAM)又は(Ca,Sr,Ba)₅(PO₄)₃Cl:Eu²⁺(SCAP)と一緒にすることにより製造することもできる。この色再現性は、必要に応じて、緑色蛍光体(例えばEuドーブしたチオ没食子酸塩又はSr-アルミン酸塩)及び赤色蛍光体(例えばEuドーブしたSr-窒化物又はSr-硫化物)を添加することによってなお改善することができる。もう一つの方法は、青色発光LED(約470~485nmのピーク発光)による唯一の蛍光体としてのEuドーブしたサイアロンの使用である。

【0015】Eu²⁺含有量に依存して、この材料の固有色は淡黄〜深黄/黄ーオレンジである。優れた温度安定性及び機械的安定性のために、このEu-サイアロンは環境に優しい黄又は黄ーオレンジの顔料として特に適している。これは特に、Mは10%より高くEuで置き換えられている場合に該当する。

【0016】次に、本発明を複数の実施例を用いて詳細に説明する。

【0017】

【実施例】GaInN-チップと一緒に備えた白色LEDに使用するために、例えば米国特許第5998925号明細書に記載されたと同様の構造を使用する。この種の白色光のための光源の構造を図1に例示的に示した。この光源は、第1及び第2の電気接続部2, 3を備えた、ピーク発光波長460nmを示すInGaNタイプの半導体素子(チップ1)であり、これは光透過性基体容器8中で凹設部9の範囲内に埋め込まれている。接続部3の一方は、ボンディングワイヤ14を介してチップ1と接続されている。この凹設部は壁部17を有し、この壁部17はチップ1の青色一次放射用のリフレクタとして用いられる。この凹設部9は注入材料5で充填されており、この注入材料5は主成分としてエポキシ注入樹脂(80~90質量%)及び蛍光体顔料6(15質量%未満)を含有する。他のわずかな成分は、特にメチルエーテル又はエアロジル(Aerosil)である。この蛍光体顔料はYAG:Ce顔料及びサイアロン顔料からなる混合物である。

【0018】図2では、照明ユニットとしての平板型照明20部分図を示す。この照明ユニットは、長方体の外部ケーシング22を接着した共通の支持体21からなる。その上側は共通のカバー23が設けられている。この長方体のケーシングは空所を有し、その空所内に個々の半導体一構成素子24が取り付けられている。この構成素子は360nmのピーク発光を有するUV-放射する発光ダイオードである。白色光への変換は、図1に記載されたと同様に個々のLEDの注入樹脂内に直接置かれた変換層を用いて又はUV放射線の全てが当たる面に設置されている層25によって行われる。これには、ケーシングの壁部の内部にある表面、カバー及び底部が挙げられる。変換層25は3種の蛍光体からなり、この蛍光体は、本発明による蛍光体を利用して黄、緑及び青のスペクトル領域で発光する。

【0019】サイアロンタイプのいくつかの蛍光体を表1にまとめた。これは主に $\text{Ca}_{1.5}\text{Si}_9\text{Al}_3\text{N}_{16}$ のタイプのCa-サイアロンであり、その際、1~10モル%のカチオンCaの割合は、Euに置き換えられている。この蛍光体の典型的な量子効率、70~80%であり、この場合、わずかなEuドーピングの場合での580nmのピーク発光が、より高いEuドーピングの場合に約590nmにシフトした。

【0020】良好な結果が、 $\text{CaSi}_{10}\text{Al}_2\text{N}_{16}$ のタイプのCa-サイアロンの場合でも達成される。80%を上回る高い量子効率は、相対的に高いEuドーピングの場合でも達成される。このピーク波長は、わずかなCa-割合のために意外にもより短い波長であった。従って、この発光を、場合によりEu含有量によって発

光の状態に影響を及ぼす手段と組み合わせて意図的に設定することができる。十分な吸収を達成するために、より低いCa含有量の場合でも、Caに対して10~25%、有利に10~15%をEuに置き換えることができる。

【0021】図3~10は、波長の関数としての多様なサイアロンの発光及び反射特性を表す。

【0022】詳細には、図3は400nmによる励起の際のサイアロン $\text{Ca}_{1.5}\text{Al}_3\text{Si}_9\text{N}_{16}:\text{Eu}^{2+}$ (2%) (試験番号HU13/01)の発光スペクトルを示す。この最大値は579nmであり、平均波長は590nmである。量子効率QEは79%である。反射率(図4)は400nmで約 $R_{400}=51\%$ であり、460nmで約 $R_{460}=64\%$ である。このデータは、一連の他の蛍光体と一緒に表1に示されている。

【0023】さらに、図5は460nmによる励起の際のサイアロン $\text{Ca}_{1.5}\text{Al}_3\text{Si}_9\text{N}_{16}:\text{Eu}^{2+}$ (2%) (試験番号HU13/01)の発光スペクトルを示す。この最大値は590nmであり、平均波長は597nmである。量子効率QEは78%である。反射率(図6)は400nmで約 $R_{400}=51\%$ であり、460nmで約 $R_{460}=64\%$ である。

【0024】サイアロンHU13/01の合成を次に例示的に詳細に説明する。

【0025】蛍光体粉末を高温-固体反応により製造する。このために、高純度の出発材料 Ca_3N_2 、AlN及び Si_3N_4 をモル比1.5:3:9で混合した。 Si_3N_4 の粒度は $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ 、 $d_{10}=0.4\mu\text{m}$ 及び $d_{90}=3.9\mu\text{m}$ である。少量の Eu_2O_3 を、ドーピングの目的で添加し、この場合相応するモル量の Ca_3N_2 を添加した。これは、Eu2モル%の割合で実験式 $(\text{Ca}_{1.47}\text{Eu}_{0.03})\text{Al}_3\text{Si}_9\text{N}_{16}$ に相当した。Euと一緒にEu-酸化物として酸素が添加されることにより、正確な実験式は $(\text{Ca}_{1.47}\text{Eu}_{0.03})\text{Al}_3\text{Si}_9\text{O}_{0.045}\text{N}_{15.97}$ である。この場合、つまり一般的な実験式は $\text{M}_{p/2}\text{Si}_{12-p-q}\text{Al}_{p+q}\text{O}_{1.5q}\text{N}_{16-q}:\text{Eu}^{2+}$ である。

【0026】個々の成分を良好に混合させた後、この粉末を約1700°Cで1~2h還元性の雰囲気(N_2/H_2)中で加熱し、かつ反応させて上記の化合物にした。

【0027】図7は400nmによる励起の際のサイアロン $\text{Ca}_{1.5}\text{Al}_3\text{Si}_9\text{N}_{16}:\text{Eu}^{2+}$ (4%) (試験番号HU14/01)の発光スペクトルを示す。この最大値は588nmであり、平均波長は595nmである。量子効率QEは76%である。反射率(図8)は400nmで約 $R_{400}=40\%$ であり、460nmで約 $R_{460}=54\%$ である。

【0028】図9は400nmによる励起の際のサイアロン $\text{CaSr}_{0.5}\text{Al}_3\text{Si}_9\text{N}_{16}:\text{Eu}^{2+}$ (4

%) (試験番号 HU15/01) の発光スペクトルを示す。この最大値は 588 nm であり、平均波長は 594 nm である。量子効率 QE は 70% である。反射率 (図 10) は 400 nm で約 R400 = 36% であり、460 nm で約 R460 = 50% である。

【0029】図 12 中では、量子効率を多様な蛍光体についての温度の関数として示した。純粋な YAG:Ce (曲線 1) は、室温で、典型的なサイアロン (曲線 2、この場合、表 1 からの HU16/01) よりも著しく高い量子効率を示した、つまり 81%、それに対して 75% を示した。意外にも、この量子効率は、80℃ の一般的な温度負荷での LED の運転の場合に完全に同じにな

った。つまり Eu-ドープしたサイアロン蛍光体は、一見して、室温では平均的な結果を提供するように見えるが、これの発光変換 LED (Lukoled) 及び他の温度負荷された照明ユニットのための使用は、標準として使用される YAG:Ce に匹敵する。通常、このような照明ユニットにおいて、色再現性を改善するためにいまだに Gd により変性されたガーネットが併用されている。純粋な YAG:Ce とは反対に、YAG:Ce の変性 (Y の代わりに Gd 50 モル%) は、すでに温度負荷のもとで明らかに悪い結果を生じる。

【0030】

【表 1】

化合物	省略形	QE	R370	R400	R460	Max. Em.	x	y
Ca1.5Al3Si2N16:Eu2+ (2%)	HU13/01	79		51	64	580	0.498	0.490
Ca1.5Al3Si9N18:Eu2+ (4%)	HU14/01	78		40	64	588	0.515	0.477
Ca1.5Al3Si9N18:Eu2+ (4%)	HU18/01	75		41	57	583	0.510	0.481
Ca1.5Al3Si9N18:Eu2+ (6%)	HU33/01	78		39	54	587	0.518	0.474
Ca1.5Al3Si9N18:Eu2+ (8%)	HU34/01	70		36	48	588	0.525	0.488
CaAl2Si10N18:Eu2+ (8%)	HU54/01	81	58	57	71	578	0.479	0.504
CaSr0.5Al3Si9N18:Eu2+ (4%)	HU15/01	70		36	50	588	0.508	0.479
Ca1.5Al3.5Si8.5O0.5N15.5:Eu2+ (4%)	HU36/01	64	55	55	67	582	0.488	0.496
Ca1.5Al2.7Ga0.3Si9N16:Eu2+ (8%)	TF38/01	43	16	18	30	594	0.530	0.463
Sr1.5Al3Si9N18:Eu2+ (4%)	HU19/01	41	44	49	62	512	0.307	0.509

【0031】

【表 2】

蛍光体	YAG:Ce に対して 相対的な発光効率	Ra	色座標 x	色座標 y
YAG:Ce	100%	79	0.304	0.326
YAG:Ce 及び (Y,Gd)AG:Ce	95%	83	0.320	0.310
YAG:Ce 及び サイアロン HU34/01	106%	81	0.319	0.311
TbAG:Ce 及び サイアロン HU34/01	100%	83	0.336	0.305
クロロシリケート及び サイアロン HU34/01	104%	82	0.325	0.309

【0032】これは、発光変換 LED に、この場合、YAG:Ce 又は他の温度安定性蛍光体と一緒に蛍光体混合物に使用するために、Eu-ドープングサイアロンが特に適していることを示す。

【0033】図 13 は、460 nm の一次発光を示す青色 InGaP-LED をベースとし、YAG:Ce 及び表 1 からの Eu-ドープングサイアロン HU34/01 の混合物を使用した発光変換 LED (Lukoled) の発光スペクトルを示す。この場合、色再現性は相応する混合物 YAG:Ce 及び (Y, Gd) AG:Ce の場合よりも若干悪くなるが、効率は 6% 高い。これと比較して、

光体として YAG:Ce をもっぱら使用した場合、発光効率も色再現性も明らかに悪化する、表 2 参照。

【0034】さらに、表 2 には、他の蛍光体をサイアロンと混合して高い効率を示すことも記載されている。これは、特に Ce-ドープング TbAG 又は Eu-ドープングクロロシリケートとの混合 (例えばドイツ国実用新案第 20108013、3 号明細書参照、この場合 2 つの蛍光体はさらに相互参照によって詳細に記載されている) において該当する。相対的な割合に応じて、この場合周知のように、純粋な蛍光体の色座標間の結合線上で多様な色座標が達成される。

【0035】図14は、青色LED（460nm）と、GO-蛍光体0.5～9%の混合割合でのGO-蛍光体との間の混合物の色座標を示す。従って、所望の色の有色LEDが実現される。青色、ピンク色～黄オレンジ色までの結合線上の色座標（注入樹脂のわずかな影響のような二次効果を無視して）が達成される。

【図面の簡単な説明】

【図1】白色光用の光源（LED）として用いる半導体素子の断面図

【図2】本発明による蛍光体を備えた照明ユニットの部分図

【図3】本発明による多様なサイアロン-蛍光体の発光スペクトルをグラフで示す図

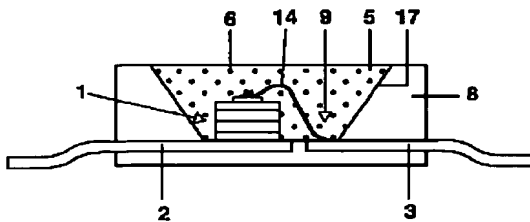
【図4】本発明による多様なサイアロン-蛍光体の反射スペクトルをグラフで示す図

【図5】本発明による多様なサイアロン-蛍光体の発光スペクトルをグラフで示す図

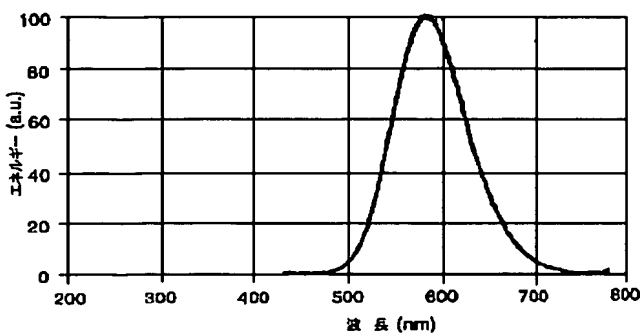
【図6】本発明による多様なサイアロン-蛍光体の反射スペクトルをグラフで示す図

【図7】本発明による多様なサイアロン-蛍光体の発光スペクトルをグラフで示す図

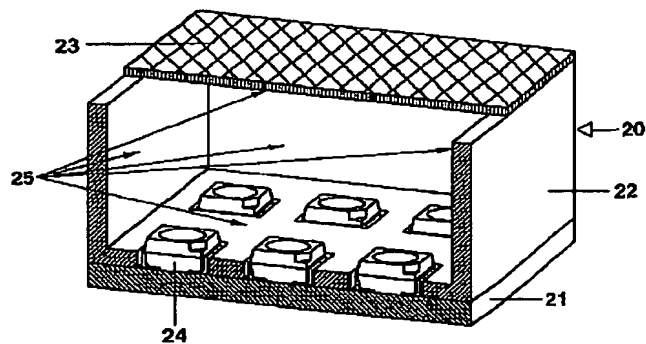
【図1】



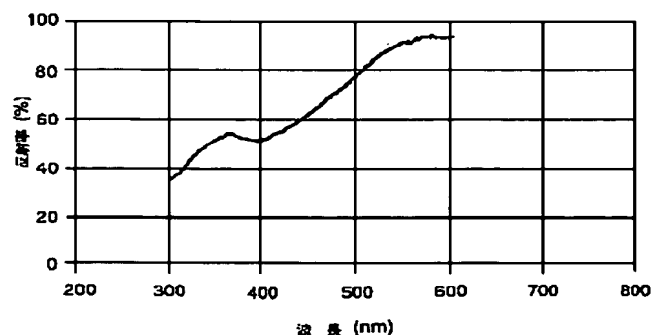
【図3】



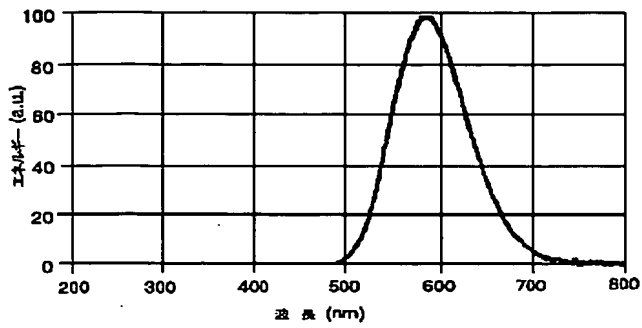
【図2】



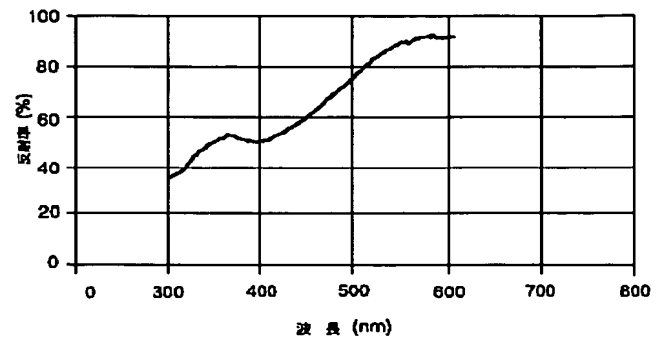
【図4】



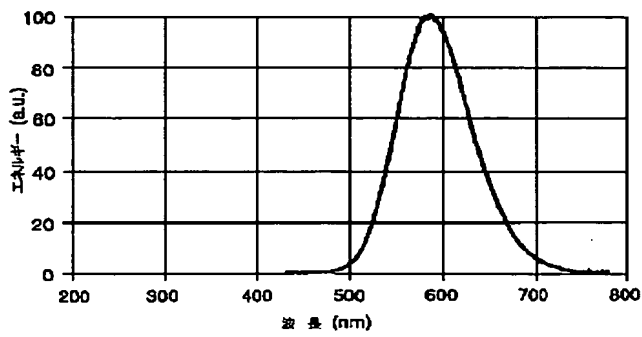
【図 5】



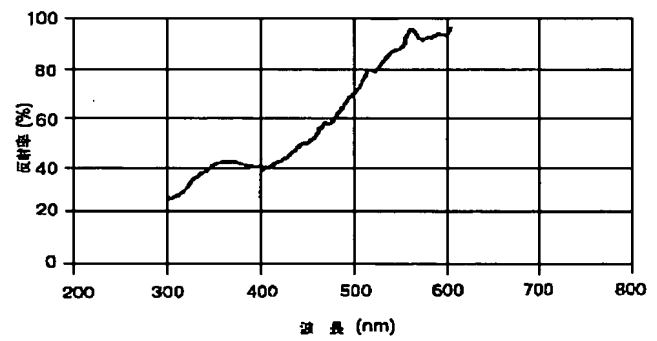
【図 6】



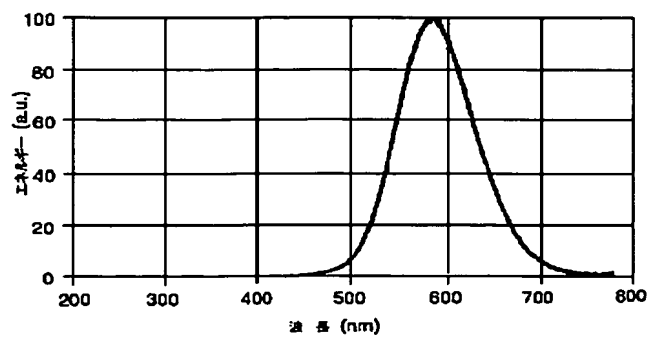
【図 7】



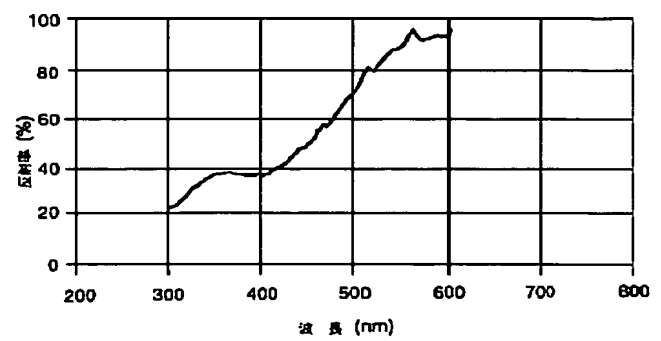
【図 8】



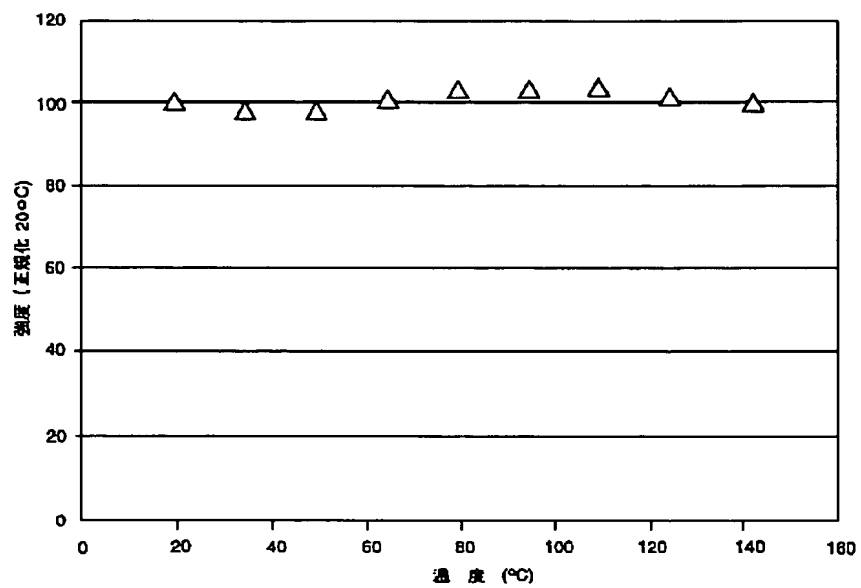
【図 9】



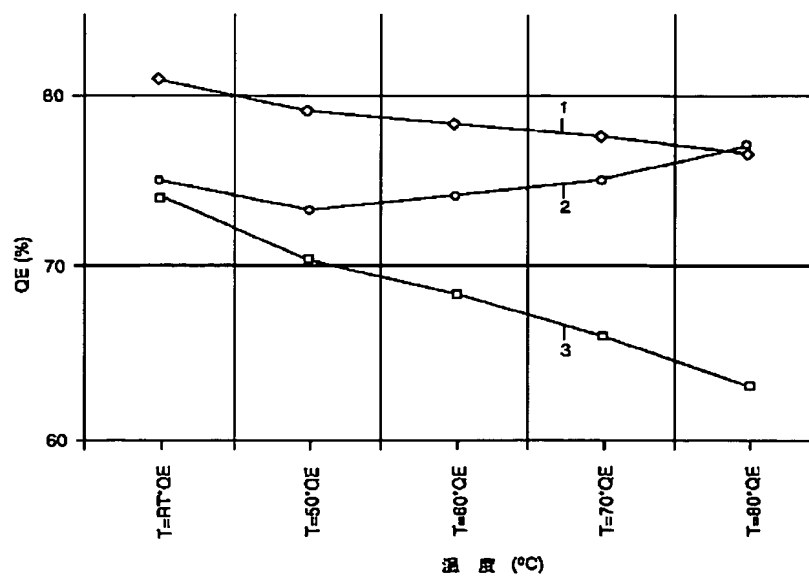
【図 10】



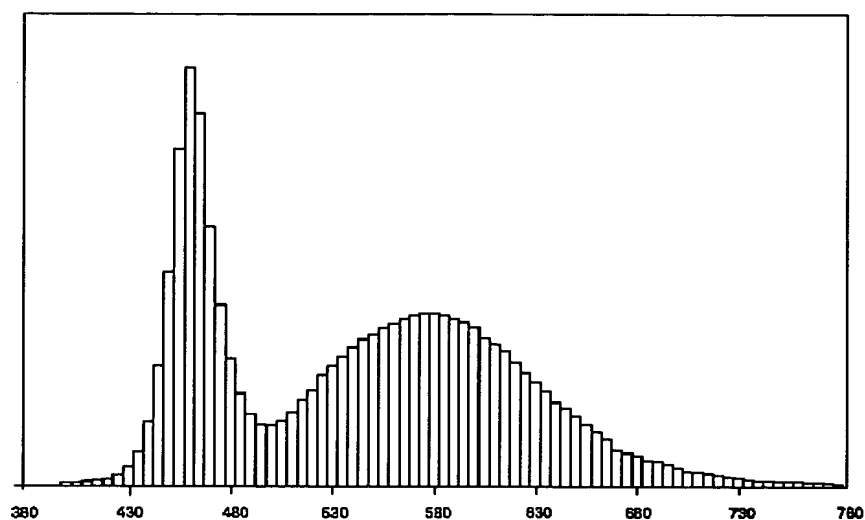
【図 11】



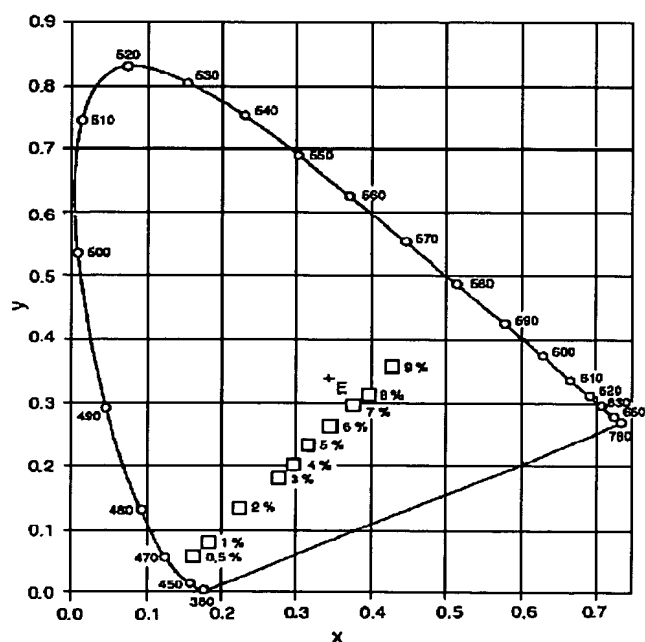
【図 12】



【図13】



【図14】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁷

C09K 11/80

識別記号

CPM

F I

C09K 11/80

特マコード(参考)

CPM

(72) 発明者 フランツ クマー

ドイツ連邦共和国 ミュンヘン シュライ

スハイマー シュトラッセ 121

(72) 発明者 ギュンター フーバー

ドイツ連邦共和国 シュローベンハウゼン

ライプアイゼンシュトラッセ 1

F ターム(参考) 4H001 CA02 CA05 XA07 XA08 XA12
XA13 XA14 XA17 XA20 XA31
XA38 XA39 XA49 XA65 YA58
YA63
5F041 AA11 AA14 CA34 DA19 DA36
DA44 DB09 DC08 DC22 DC83
EE25 FF11